WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM

Internationales Buro INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

B01J 8/06, 19/24, 19/18, 8/00, 8/18, 8/22, 4/04, C07C 209/36, C06B 21/00

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 98/55216

A1

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

10. Dezember 1998 (10.12.98)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP98/03037

(22) Internationales Anmeldedatum:

22. Mai 1998 (22.05.98)

(30) Prioritätsdaten:

197 23 322.8

4. Juni 1997 (04.06.97)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LANGER, Reinhard [DE/DE]; Scheiblerstrasse 111, D-47800 Krefeld (DE).

AKTIENGE-BAYER (74) Gemeinsamer Vertreter: SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(81) Bestimmungsstaaten: BR, CA, JP, MX, US, europäisches

(54) Title: REACTOR FOR CARRYING OUT RAPID HIGHLY EXOTHERMIC REACTIONS AND USE THEREOF

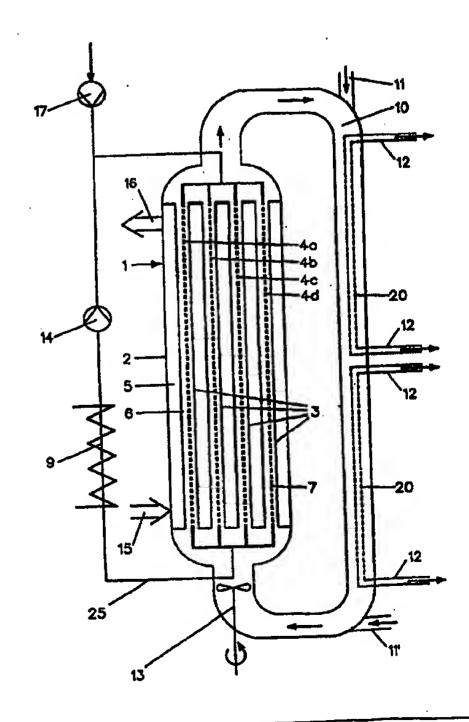
(54) Bezeichnung: REAKTOR ZUR DURCHFÜHRUNG RASCHER STARK EXOTHERMER REAKTIONEN UND DESSEN VER-WENDUNG

(57) Abstract

The invention relates to a tube bundle reactor (1) for rapid highly exothermic reactions, consisting of a reactor housing (2) with a bundle (3) of tubes (6) as a reaction zone, said tubes being optionally interconnected radially in relation to their longitudinal extension, eduction pipes (4, 11), a product outlet (12) and a heat exchanger (5). The invention is characterised in that said eduction pipes (4) are configured as pipelines (4a, 4b, 4c, 4d) which are arranged in the tubes (6) of the bundle (3) and which are provided with a plurality of openings (7), said openings (7) in the pipelines (4a, 4b, 4c, 4d) being spread over the entire length of or a section of the length of the reaction zone.

(57) Zusammenfassung

Es wird ein Rohrbündelreaktor (1) für rasche stark exotherme Reaktionen beschrieben. Dieser besteht aus einem Reaktorgehäuse (2) mit einem Bündel (3) von Rohren (6), die ggf. radial zu ihrer Längenausdehnung miteinander verbunden sind, als Reaktionszone, Eduktzuleitungen (4, 11), einem Produktauslaß (12) und einem Wärmetauscher (5) und ist dadurch gekennzeichnet, daß die Eduktzuleitungen (4) als in den Rohren (6) der Bündel (3) verlaufende und mit einer Vielzahl von Öffnungen (7) versehene Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) ausgeführt sind, wobei die Öffnungen (7) in den Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) über die ganze Länge oder einen Längenabschnitt der Reaktionszone verteilt sind.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

A.	L ·	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
A		Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
A'		Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
A'		Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
\mathbf{A}^{t}		Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
B		Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
B		Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
B	E	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
B	F	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
В	G	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
В	J	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	ŲA	Ukraine
B	Ŕ	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
В	Y	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
C	A	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
C	F	Zentralafrikanische Republik	JP	Јарап	NE	Niger	UZ	Usbekistan
C	G	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
C	Н	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
C	I	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
C	M	Kamerun		Korea	PL	Polen		
C	N	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
C	U	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
C	Z	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
D	B	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
D	K	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
E	E	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		
		•						

WO 98/55216 PCT/EP98/03037

Reaktor zur Durchführung rascher stark exothermer Reaktionen und dessen Verwendung

Die vorliegende Erfindung betrifft einen Reaktor zur Durchführung rascher stark exothermer Reaktionen in der flüssigen Phase. Der Reaktor besteht im Wesentlichen aus einem gekühlten Rohrbündel. In den Rohren sind poröse Leitungen angebracht, über die einer der Reaktanden eindosiert wird, derart, daß entlang der Rohrachse gleichmäßig die Reaktionswärme freigesetzt wird und keine Bereiche mit zu hoher Eduktkonzentration entstehen. Das Reaktionsmedium durchströmt die Reaktorrohre in einer definierten Richtung, wird an dem einen Ende des Rohrbündelreaktors entnommen und gegebenenfalls in einem Umpump-Kreislauf dem anderen Ende wieder zugeführt.

Der Reaktor ist besonders geeignet zur Sumpfphasenhydrierung von Dinitrotoluol.

15

20

Reaktoren für schnelle stark exotherme Umsetzungen verlangen eine effektive Ableitung der Reaktionswärme. Die bekannten Reaktoren weisen daher zu diesem Zweck komplexe Einbauten auf und sind ferner mit leistungstarken Rührern versehen, um die Reaktanden rasch zu vermischen und die frei werdende Wärme auf die Wärmetauscherflächen zu übertragen.

Solche Reaktoren sind z.B. in den Schriften US-A 3 243 268 und EP-A 263 935 beschrieben.

Die Nachteile der bekannten Reaktoren sind ungleichmäßige Durchströmung der Wärmetauscher und ungleichmäßige Durchmischung der Reaktanden. Damit können die Parameter Temperatur und Eduktkonzentration in Teilen des Reaktors ungünstige Werte annehmen, was zu Produkt-Ausbeuteverlust und Schädigung eines beteiligten Katalysators führt.

30

Ferner können sich feste Katalysatoren in schlecht durchströmten Bereichen des Reaktors ablagern.

Ziel ist eine Reaktorkonstruktion, die erlaubt, rasch ablaufende, stark exotherme Reaktionen kontrolliert in der Nähe der Wärmetauscherflächen ablaufen zu lassen und die zuverlässig eine gleichmäßige Durchströmung des gesamten Reaktors gewährleistet.

Gegenstand der Erfindung ist ein Rohrbündelreaktor für rasche stark exotherme Reaktionen bestehend aus einem Reaktorgehäuse mit einem Bündel von Rohren, die gegebenenfalls radial zu ihrer Längenausdehnung mit einander verbunden sind, als Reaktionszone, Eduktzuleitungen, Produktauslaß und Wärmetauscher dadurch gekennzeichnet, daß eine Eduktzuleitung als in den Rohren der Bündel verlaufende und mit einer Vielzahl von Öffnungen versehene Rohrleitungen ausgeführt ist, wobei die Öffnungen in den Rohrleitungen über die ganze Länge oder einen Längenabschnitt der Reaktionszone verteilt sind.

Bevorzugt weisen die Reaktionsrohre eine Katalysatorschüttung auf.

Der maximale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen in der Eduktzuleitung beträgt insbesondere 1 mm bevorzugt 0,7 mm.

Der minimale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen in der Eduktzuleitung beträgt insbesondere 1 μm bevorzugt 7 μm .

Т

20

In einer bevorzugten Ausführung der Erfindung ist die Eduktzuleitung Teil einer Eduktschleife mit einem Fördermittel, z.B. einer Umwälzpumpe und einem besonderen Wärmetauscher.

- In einer bevorzugten Ausführung weist der Reaktor eine Umpumpschleife für die Reaktionsmischung mit einem Fördermittel, mindestens einer weiteren Eduktzuleitung und einen Auslaß für das Reaktionsprodukt auf. Das Fördermittel ist beispielsweise eine Mammutpumpe oder eine Umwälzpumpe.
- Je nach Art der durchzuführenden Reaktion ist es vorteilhaft in der Umpumpschleife des Reaktor eine Katalysatorsuspension umlaufen zu lassen.

Im Bereich vor dem Eingang des Bündels von Reaktionsrohren des Reaktors ist in einer bevorzugten Variante der Erfindung eine Gaszuführung für gasförmige Reaktanden und ggf. zusätzlich ein Mischerelement, insbesondere ein statischer und/oder dynamischer Mischer, angeordnet um eine zügige Durchmischung mit den umlaufenden Reaktanden zu erreichen.

In einer weiteren Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors schließt sich in dem Reaktor an die aus den Rohren gebildete Reaktionszone eine adiabatische Verweilzone an, in der die Reaktionsmischung weiter reagieren kann.

10

15

20

25

5

In der Umpumpschleife kann eine Zuleitung für Katalysator vorgesehen sein, wenn z.B. Katalysator in einer Suspension in der Schleife mit umgepumpt wird. Auch ist die Ableitung für das Reaktionsprodukt in einer bevorzugten Ausführung in der Umpumpschleife angeordnet. Die Produktableitung ist bevorzugt ein Absetztank mit Auslauf oder besonders bevorzugt eine Filtrationseinheit, insbesondere eine Einheit zur Querstromfiltration.

Weiterer Gegenstand der Erfindung ist die Verwendung des erfindungsgemäßen Reaktors zur Durchführung stark exothermer Reaktionen, insbesondere zur Hydrierung von Dinitrotoluol.

Als Wärmetauscher umgebene Rohrbündel können solche verwendet werden, wie sie aus dem Stand der Technik grundsätzlich bekannt sind, d.h. Rohrbündel die zwischen 10 und 100 000 Rohre, bevorzugt zwischen 100 und 10000 Rohre mit einem Innendurchmesser von 10 bis 100 mm, bevorzugt von 20 bis 50 mm besitzen.

Die Rohrlänge beträgt je nach Anwendungsfall insbesondere von 1 bis 50 m, bevorzugt von 2 bis 20 m, besonders bevorzugt von 3 bis 10 m.

Die Reaktionswärme kann durch Siedekühlung oder mittels flüssiger Wärmeträger abgeführt werden, bevorzugt wird durch Siedekühlung direkt Dampf erzeugt.

10

20

Der Wärmeträger kann sich in einem die Rohre umgebenden Wärmetauscher bewegen. Alternativ kann die Reaktionszone in dem rohrähnlichen Bereich zwischen einer Schar von Wärmeaustauscherrohren angeordnet sein. Dabei fließt also der Wärmeträger durch ein Rohrbündel, während die Reaktion in den miteinander verbundenen rohrähnlichen Zwischenräumen abläuft (Typ Lindereaktor). Bevorzugt findet in den Rohren die Reaktion statt und befindet sich der Wärmeträger in dem die Reaktionsrohre umgebenden Wärmetauscher.

Im erfindungsgemäßen Reaktor befinden sich, wie oben erwähnt, parallel zur Wärmeaustauscherwand poröse Leitungen, durch die mindestens eines der Edukte fließt. Diese Eduktleitungen können im Kontakt zur Wärmeträgerwand stehen oder sind in einem Abstand von 1 bis 50 mm, bevorzugt von 2 bis 25 mm, besonders bevorzugt von 4 bis 12 mm von der Wärmeaustauscherwand angeordnet.

In gekühlten Bereichen des Reaktors besitzen die Eduktleitungen Poren, insbesondere Löcher oder Bohrungen als Öffnungen.

Die Öffnungen sind insbesondere in regelmäßigen Abständen derart angebracht, daß auf eine Pore von 10 bis 100 000, bevorzugt von 30 bis 10 000, besonders bevorzugt von 100 bis 1000 ml Reaktionsraum kommen. Leitungen aus Metallsinterwerkstoff mit einer sehr großen Porenzahl können ebenfalls eingesetzt werden.

Der Druckverlust beim Durchströmen der Poren ist insbesondere so bemessen, daß aus allen Poren ungefähr die gleiche Menge Edukt langsam ausströmt.

Die Eduktleitungen sind wie beschrieben bevorzugt zu einem Eduktkreislauf zusammengefaßt, so daß in den Leitungen keine Bereiche sind, in denen das Edukt nicht oder nur sehr langsam fließt. Ferner bietet der Eduktkreislauf den Vorteil, daß das Edukt gekühlt werden kann.

25

Um den Reaktor stark durchströmen zu können, muß der größte Teil der den Reaktor durchfließenden Materie in der bevorzugten Variante dem Reaktoreingang wieder zugeführt werden. Dies erfolgt im Sinne eines Schleifen-Reaktors, in dem die beiden Reaktorenden mit einer Leitung verbunden sind.

5

10

15

25

In dieser Leitung können sich Vorrichtungen zur Durchführung einer Querstromfiltration befinden, um Feststoffe die im Reaktor verbleiben sollen zurückzuhalten, während das gebildete Produktgemisch ausgeschleust wird. Dadurch können heterogene Kontakte im Reaktor zurückgehalten werden. Heterogene Katalysatoren können aber auch von einem entnommenem Teilstrom auf konventionelle Art abgetrennt und wieder rezykliert werden. An einer geeigneten Stelle muß eine Vorrichtung zum Umpumpen des Reaktor-Loop-Inhaltes angebracht sein. Dies kann z.B. eine Kreiselpumpe oder ein Propeller sein.

Wird als eine Reaktionskomponente ein Gas, z.B. Wasserstoff eingesetzt, so kann dieses Gas einfach vor dem Rohrbündel eingedüst werden und wird mit der Flüssigkeit im Kreis gefahren, bevorzugt wird das Gas von unten eingespeist, durch Verwirbelung oder gezielt durch eine Gasverteilung auf die Reaktorrohre verteilt am oberen Reaktorende von der Flüssigkeit separiert und wieder dem unteren Reaktorende zugeführt.

Bei einem solchen gepumpten Gaskreislauf kann ggf. auf die besondere Pumpe im Umpump-Kreislauf verzichtet werden, weil das Gas den Flüssigkeitskreislauf in Bewegung setzt und antreibt.

Der erfindungsgemäße Reaktor ist besonders geeignet zur Hydrierung von Nitroaromaten.

Besonders bevorzugt wird Dinitrotoluol zu Toluylendiamin hydriert. Durch die geringen

DNT-Konzentrationen an allen Stellen des Reaktors wird eine besonders geringe

Nebenproduktbildung und Katalysatordesaktivierung beobachtet.

Der Reaktor kann unter Normaldruck (Umgebungsdruck) oder unter erhöhtem Druck betrieben werden, bevorzugt wird der Reaktor im Bereich von 10³ bis 3 ·10⁵ hPa. besonders bevorzugt von 3 ·10³ bis 10⁵ hPa betrieben.

Die Erfindung wird nachstehend anhand der Figuren näher erläutert, ohne daß dadurch die Erfindung im Einzelnen eingeschränkt ist.

In den Figuren zeigen:

5

- Fig. 1 Eine schematische Ansicht des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors mit Eduktkreislauf und Umpumpschleife 10.
- Fig.2a Ein Teil des Rohrbündelreaktors mit Reaktionsrohr 6 und Eduktzuleitung 4 für einen Reaktor ohne Edukt-Kreislaufführung.
 - Fig.2b Ein vergrößertes Detail aus dem Längsschnitt durch das Rohr 6 nach Fig. 2a zur Erläuterung der Anordnung der Öffnung 7.
- Fig.2c Ein Querschnitt durch ein Reaktionsrohr 6 gemäß Fig. 2a.
 - Fig. 3 Ein Reaktionsrohr 6 entsprechend Fig. 2a mit Katalysatorschüttung 8.
 - Fig. 4a Einen schematischen Querschnitt durch ein erfindungsgemäßes Rohrbündel 3.

20

- Fig.4b Einen schematischen Querschnitt einer Variante zu dem erfindungsgemäßen Rohrbündel 3.
- Fig.5a Einen schematischen Längsschnitt durch ein Reaktorrohr 6 mit innenliegender Eduktzuleitung als Teil eines Eduktkreislaufs.
 - Fig.5b Einen vergrößterten Ausschnitt von Fig. 5a.
 - Fig.5c Einen Querschnitt durch das Bündelrohr 6 gemäß Fig. 5a.

30

Fig. 6 Einen schematischen Längsschnitt durch ein Reaktionsrohr 6 entsprechend Fig. 5a mit Katalysatorschüttung 8.

- Fig. 7 Eine Variante zu der Reaktoranordnung gemäß Fig. 1 mit zusätzlichem Eduktkreislauf für gasförmige Edukte.
- Fig. 8 Eine Variante zu der Reaktoranordnung gemäß Fig. 7, bei der die Gaszuleitung in der Nähe des Eingangs der Reaktorrohre erfolgt.
 - Fig.9 Eine schematische Reaktoranordnung des Rohrbündel-Reaktors mit Eduktkreislauf und Umpumpschleife sowie einer adiabatischen Verweilzone 26.

Beispiele

Beispiel 1

5

10

15

20

In dem in Fig. 1 gezeigten Aufbau ist ein Bündel 3 von Reaktionsrohren 6 in einem Reaktorgehäuse 1 untergebracht und im Bereich der Reaktionszone von einem Wärmetauscher 5 mit einer Kondensatzuleitung 15 und einer Dampfableitung 16 umgeben. In den Reaktionsrohren 6 verlaufen Eduktzuleitungsrohre 4a, 4b, 4c, 4d, entsprechend Fig. 4a konzentrisch. Die Eduktzuleitungen 4a bis 4d sind Teil eines Eduktkreislaufes 25, in dem eine Förderpumpe 14 sowie ein Wärmetauscher 9 vorgesehen sind. Über eine Zuleitungspumpe 17 wird in der Reaktion verbrauchtes Edukt nachgeliefert. Die Reaktionsrohre 6 weisen entsprechend Fig. 5a und Fig. 5b in einem Teilbereich mit Öffnung versehene Eduktleitungen 4 auf. Durch die Vielzahl von Öffnungen 7 in der Eduktleitung 4 strömt das Edukt in die Reaktionszone des Rohres 6 ein (siehe Fig. 5b). Der Reaktor 1 mit dem Rohrbündel 3 ist Teil eines Umpumpkreislaufs 10, in dem die Reaktionsmischung und das über die Eduktzuleitung 11 oder 11- zugeführte weitere Edukt umgewälzt werden. Der Umlauf wird gefördert entsprechend Fig. 1 mit Hilfe einer Umwälzpumpe 13. In den Umpumpkreislauf ist ferner eine Querstromfiltereinheit 20 eingebaut, um aus der Reaktion erhaltenes Produkt aus dem Kreislauf entfernen zu können. Das Produkt wird abgeführt über die Ableitung 12.

In einer vereinfachten Ausführung wird entsprechend Fig. 2a anstelle des Eduktkreislaufs 25 eine einfache Eduktzuführung 4 in die Rohre 6 des Rohrbündels vorgesehen.

25

30

Fig. 3 zeigt einen schematischen Längsschnitt durch die gleiche Anordnung, bei der das Reaktionsrohr 6 auf seine Länge auf einer Katalysatorschüttung 8 gefüllt ist.

Eine erfindungsgemäße Variante der Anordnung der Reaktionsrohre 6 ist in Fig. 4b dargestellt. In Fig. 4b bilden die Zwischenräume zwischen Wärmetauscherrohren 5 rohrförmige Zwischenräume 6- als Reaktionszonen, in denen die Eduktleitungen 4 zur Zuleitung des Eduktes verlaufen. Die rohrförmigen Zwischenräume 6'- sind radial zu ihrer Längsausdehnung über Zwischenräume 27 zwischen den Wärmeträgerrohren 5 mit-

10

15

einander verbunden, wenn die Wärmetauscherrohre beabstandet sind, wie in Fig. 4b dargestellt.

Fig. 5a zeigt einen schematischen Längsschnitt durch ein Reaktionsrohr 6 aus einer Anordnung gemäß Fig. 1, bei dem die Eduktzuleitung 4 Teil eines Eduktkreislaufs ist, aber nur auf einem Teilbereich der Rohrlänge von Rohr 6 Öffnungen 7 (siehe Fig. 5b) aufweist. Gemäß Fig. 5c ist dabei eine konzentrische Anordnung der Eduktzuleitung 4 vorgesehen.

Im Falle der Variante gemäß Fig. 6 sind die Rohre 6 des Rohrbündelreaktors 1 auf ihrer gesamten Länge mit einer Katalysatorschüttung versehen.

Beispiel 2

Für die Reaktion unter Beteiligung weiterer gasförmiger Edukte ist die Variante der Rohrbündelreaktoranordnung gemäß Fig. 7 geeignet. Hierbei wird die unter Beispiel 1 beschriebene Anordnung gemäß Fig. 1 ergänzt durch einen weiteren Eduktkreislauf 21 zur Zuführung von gasförmigen Produkten, z.B. von Wasserstoffgas. Das Gas wird über die Zuleitung 22 dem Gaskreislauf 21 zugeführt und am Gaseinlaß 18 vor dem Mischer 13 in den Umpumpkreislauf des Reaktors eingebracht. Das Gas wird mit dem im Umpumpkreislauf 10 umlaufenden Reaktionsgemisch im Gegenstrom zu den über die Rohre 4 zugeführten weiteren Edukten durch die Reaktionszone der Rohre 6 geführt und in einem Gasabscheider 19 von der Reaktionsmischung getrennt. Das separierte Gas wird entweder über einen Kreisgaskompressor 24 in den Prozeß zurückgeführt oder am Auslaß 23 zu Reinigungszwecken abgeführt.

25

30

20

In der Anordnung gemäß Fig. 8 ist der Einlaß für das zusätzliche Eduktgas kurz vor bzw. in der Rohröffnung der Rohre 6 angebracht. Das Gas wird durch die dichte unterschiedsbedingte Umwälzung des Reaktionsgemisches (10) in die Reaktionsrohre 6 mitgeführt und wie bei der Anordnung gemäß Fig. 7 über einen Gasabscheider 19 und einen Kreisgaskompressor 24 dem Eingang des Reaktors wieder zugeführt.

Beispiel 3

Fig. 9 zeigt eine vereinfachte Reaktoranordnung des erfindungsgemäßen Rohrbündelreaktors bei der anstelle der in Anordnung gemäß Beispiel 1 vorgesehene Querstromfiltration ein einfacher Produktauslaß im Umpumpkreislauf 10 vorgesehen ist. In dieser Variante ist aber dem Ausgang des Reaktorbündels 3 ein Nachreaktor 26 als adiabatischer Verweilraum nachgeschaltet, in dem die Reaktion abklingt. Die Edukte werden hier wie in Beispiel 1 über offenporige Rohrleitungen 4 und über eine Eduktzuleitung 11 in den Umpumpkreislauf eingeführt.

10

5

Wahlweise besitzt die Anordnung einen stationären Kontakt 8 oder es wird ein Katalysatorslurry über den Einlaß 11 und den Auslaß 12 mit zwischengeschalteter Abtrennung des Katalysators zur Recyclierung hindurchgeführt.

Die Umsetzung kann auch homogen katalysiert ablaufen. In diesem Fall muß der Katalysator mit den Stoffströmen über die Pumpe 17 oder den Einlaß 11 zugeführt werden.

10

15

25

30

Patentansprüche

- Rohrbündelreaktor (1) für rasche stark exotherme Reaktionen bestehend aus einem Reaktorgehäuse (2) mit einem Bündel (3) von Rohren (6), die gegebenenfalls radial zu ihrer Längenausdehnung miteinander verbunden sind, als Reaktionszone, Eduktzuleitungen (4, 11), Produktauslaß (12) und Wärmetauscher (5) dadurch gekennzeichnet, daß eine Eduktzuleitung (4) als in den Rohren (6) der Bündel (3) verlaufende und mit einer Vielzahl von Öffnungen (7) versehene Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) ausgeführt sind, wobei die Öffnungen (7) in den Rohrleitungen (4a, 4b, 4c, 4d) über die ganze Länge oder einen Längenabschnitt der Reaktionszone verteilt sind.
- 2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Rohre (6) eine Katalysatorschüttung aufweisen.
- Reaktor nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der maximale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen (7) 1 mm bevorzugt 0,7 mm beträgt.
- Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der minimale Porenöffnungsquerschnitt der Öffnungen (7) 1 μm bevorzugt 7 μm beträgt.
 - Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Eduktzuleitung (4) Teil einer Eduktschleife 25 mit Fördermittel (14) und Wärmetauscher (9) ist.
 - 6. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Reaktor eine Umpumpschleife (10) für die Reaktionsmischung mit einem Fördermittel (13), einer Eduktzuleitung (11) bzw. (11)' und einen Produktauslaß (12) aufweist.
 - 7. Reaktor nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß in der Umpumpschleife (10) des Reaktor (1) eine Katalysatorsuspension umläuft.

- Reaktor nach den Ansprüchen 6 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß das Fördermittel (13) eine Mammutpumpe oder eine Umwälzpumpe ist.
- 9. Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich vor dem Eingang des Rohrbündels (3) des Reaktors (1) eine Gaszuführung (18) für gasförmige Reaktanden und ggf. hinter der Gaszuführung (18) zusätzlich ein Mischerelement, insbesondere ein statischer und/oder dynamischer Mischer, angeordnet ist.
- 10 Réaktor nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß sich in dem Reaktor (1) an die aus den Rohren (6) gebildete Reaktionszone eine adiabatische Verweilzone (26) anschließt.
- Reaktor nach den Ansprüchen 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß in der Umpumpschleife (10) eine Katalysatorzuleitung bzw. Recyclierungsleitung (11) und/oder die Produktableitung (12) angeordnet ist.
 - Reaktor nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Produktableitung (12) ein Absetztank mit Auslauf ist.
 - Reaktor nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Produktableitung (12) eine Filtrationseinheit (20), insbesondere eine Einheit zur Querstromfiltration ist.
- Verwendung des Reaktors nach den Ansprüchen 1 bis 13 zur Durchführung stark exothermer Reaktionen, insbesondere zur Hydrierung von Dinitrotoluol.

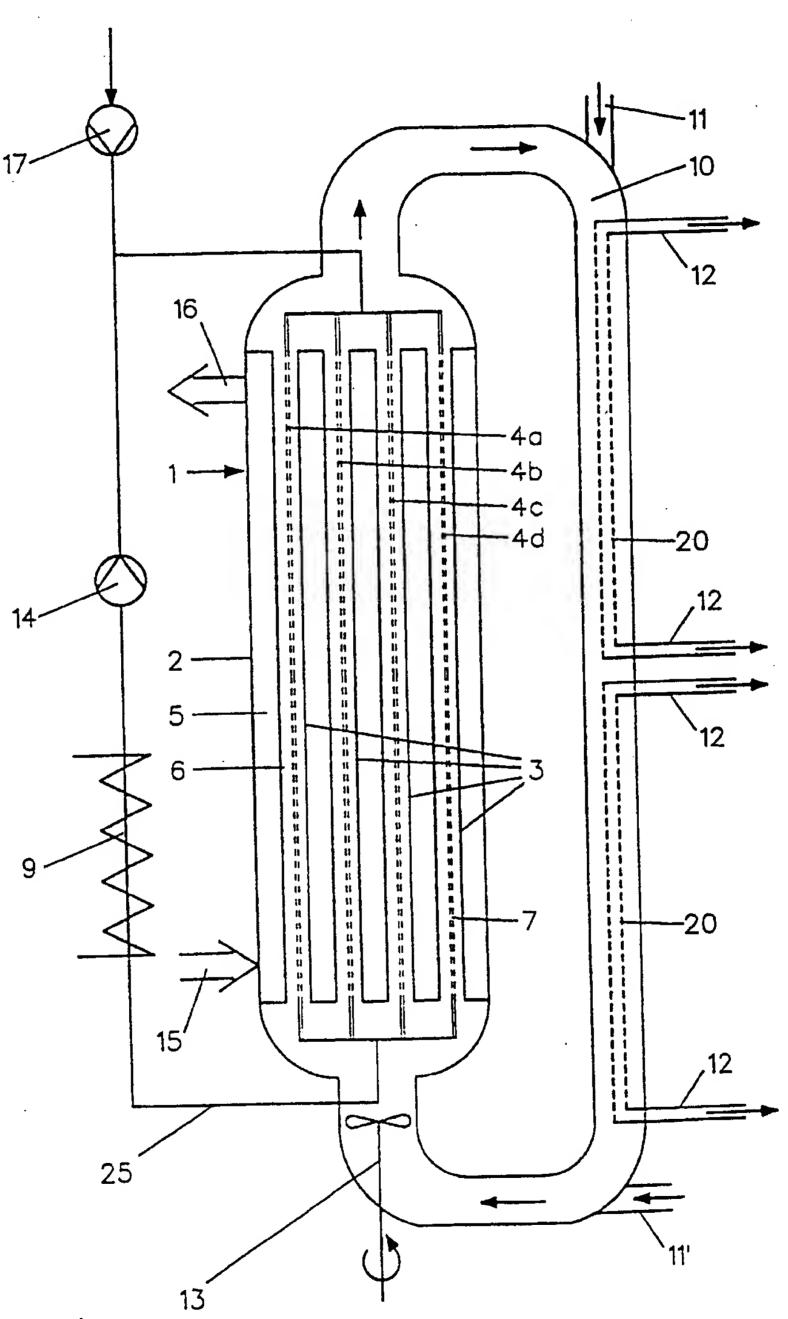


Fig.1

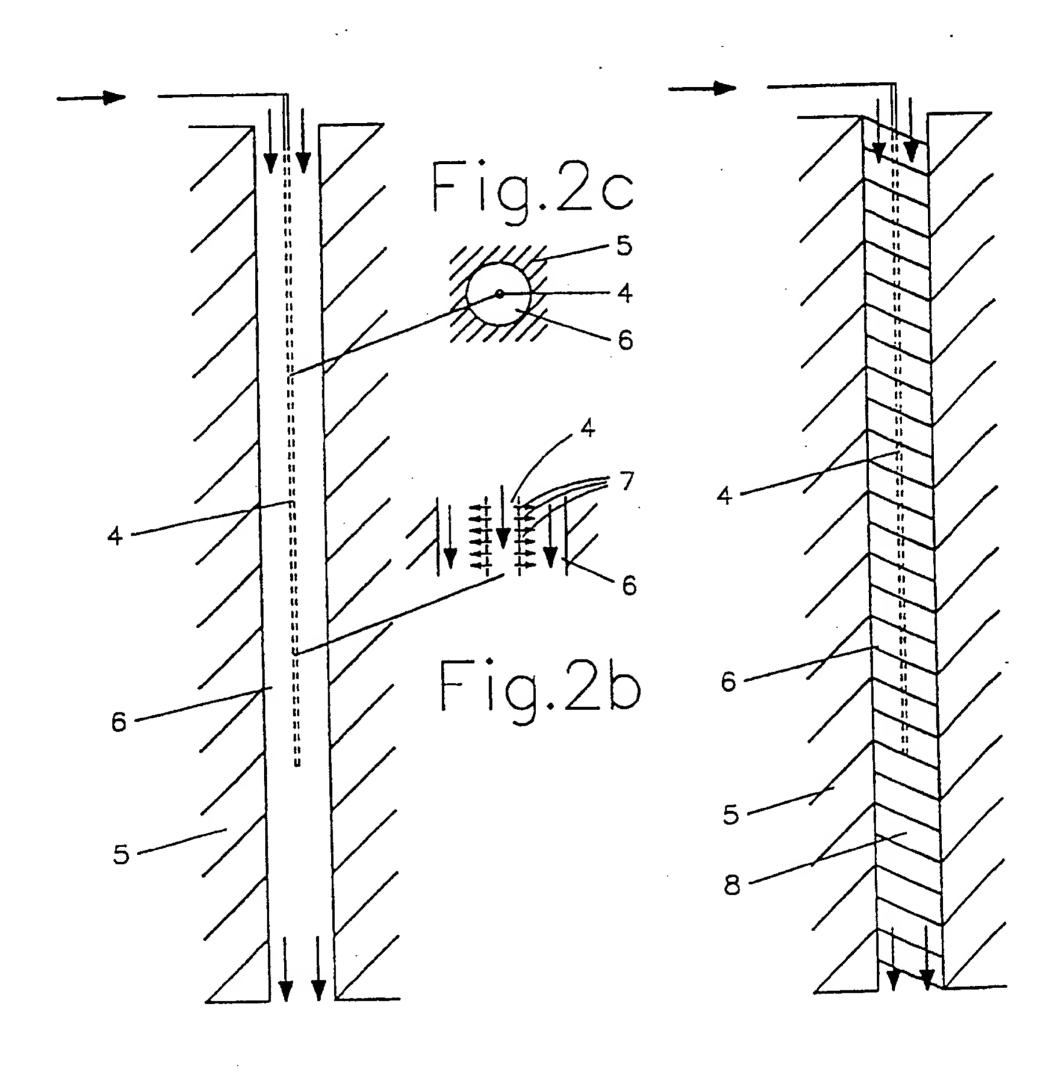


Fig.2a

Fig.3

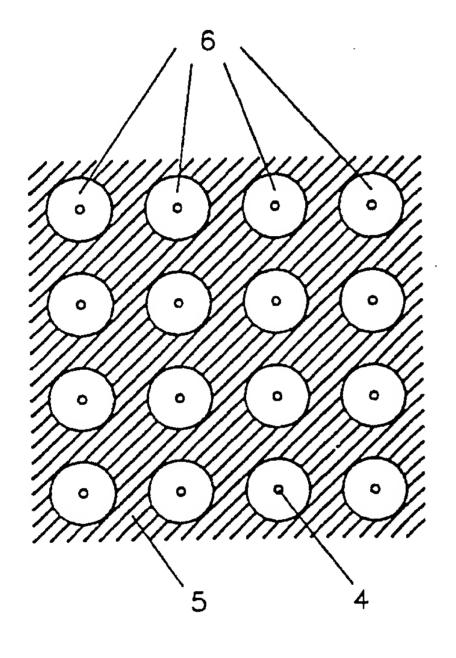


Fig.4a

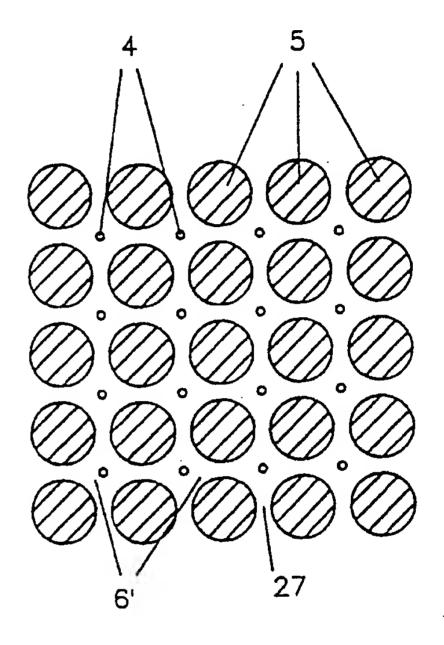
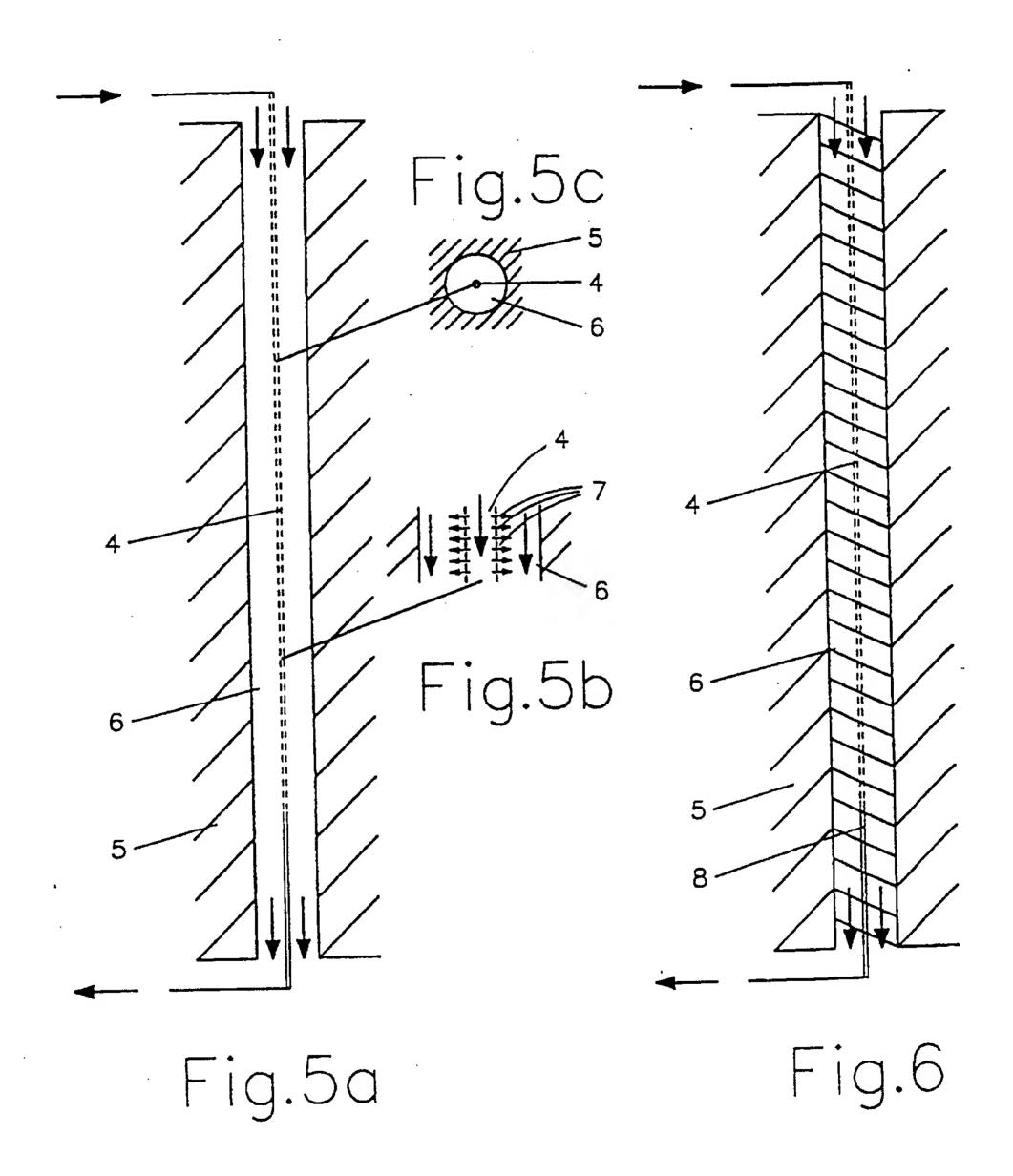
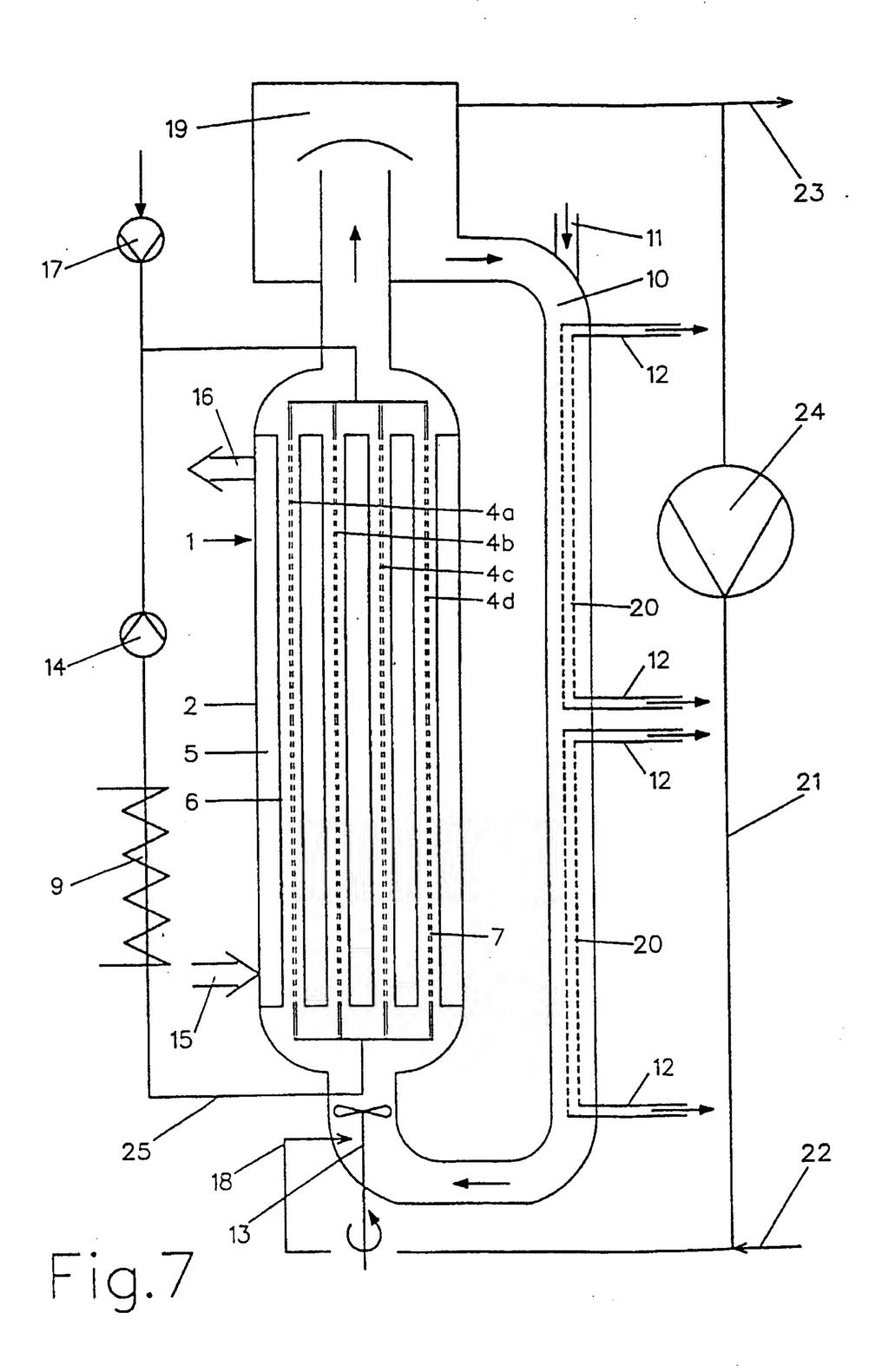
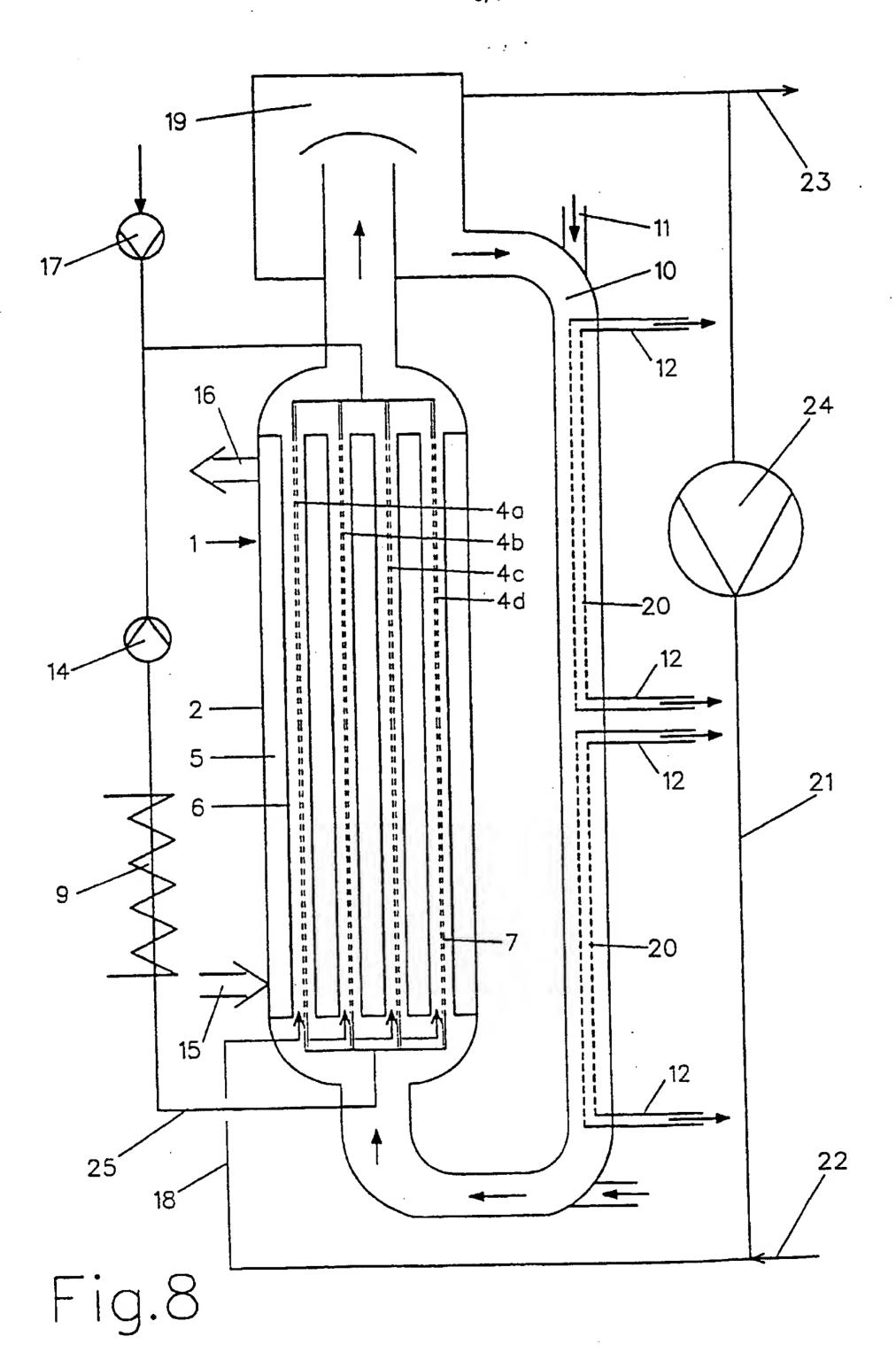
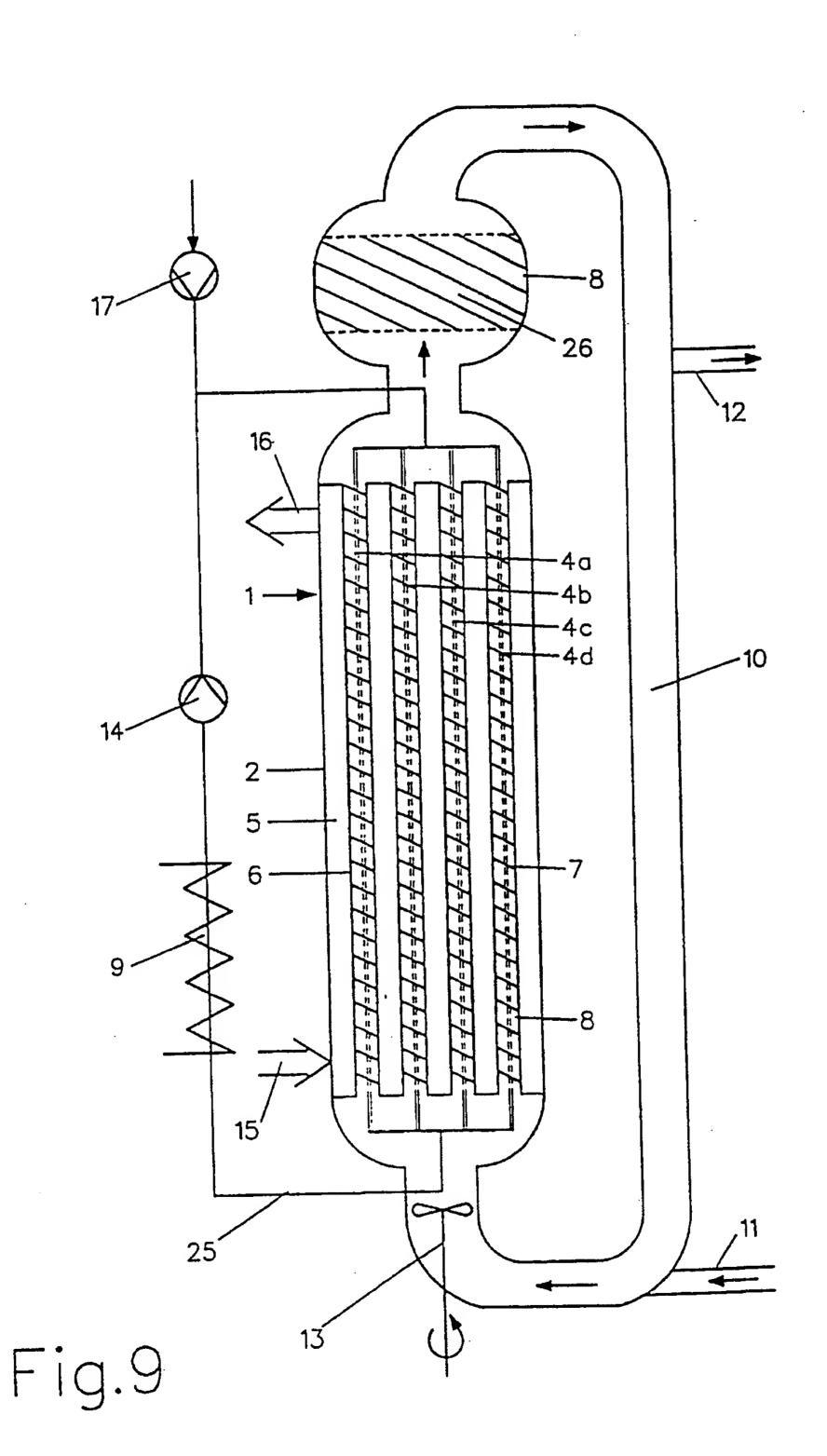


Fig.4b









INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT/EP 98/03037

IPC 6	B01J8/06 B01J19/ B01J8/22 B01J4/0			,	18
According t	to International Patent Classification (IPC) o	r to both national classifica	ation and IPC		
B. FIELDS	SEARCHED				
Minimum di IPC 6	ocumentation searched (classification systematics B01J C07C C06B	em followed by classification	n symbols)		•
Documenta	ition searched other than minimum docume	ntation to the extent that s	ich documents are includ	ed in the fields search	ed
Electronic	data base consulted during the International	l search (name of data ba	se and, where practical, s	earch terms used)	
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category :	Citation of document, with indication, who	ere appropriate, of the rele	vant passages		Relevant to claim No.
X	GB 1 548 277 A (ALL CORPORATION) 11 July				1,3,4,14
	see page 1, line 33 see page 3, line 22 see page 4, line 49	- line 48	e 5		
Α	see page 6, line 17				5,6
X	US 2 518 583 A (WATS 15 August 1950 see column 2, line s see column 4, line s see column 5, line s see column 6, line s see figures 1,2	53 - column 3, 32 - line 62 16 - line 46	line 51		1,2,14
			/ ·		
X Furt	her documents are listed in the continuation	n of box C.	X Patent family me	embers are listed in ar	nnex.
"A" docume consid "E" earlier of filling d "L" docume which citation "O" docume other r "P" docume later th	int which may throw doubts on priority claim is cited to establish the publication date of an or other special reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhimeans ent published prior to the International filing han the priority date claimed	rnational n(s) or another ibition or date but	cited to understand invention X° document of particular cannot be considered involve an inventive cannot be considered cannot be considered document is combined.	not in conflict with the the principle or theory ar relevance; the claim of novel or cannot be step when the document relevance; the claim of to involve an invented with one or more chation being obvious to	application but underlying the ned invention considered to nent is taken alone ned invention the step when the other such docute a person skilled
	actual completion of theinternational search 4 October 1998	-	Date of mailing of the 22/10/19	e international search	report
- , , - , - , - , - , - , - , - , -	mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Par NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 ep Fax: (+31-70) 340-3016	1	Authorized officer Vlassis,		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT/EP 98/03037

0.1041-	Non's Pooliticality Control of the C	PC1/EP 98/03037
	cition) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category -	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 268 299 A (RUSSELL S.T.) 23 August 1966	1,2,14
Α	see column 3, line 33 - line 70 see column 4, line 19 - column 5, line 11 see column 5, line 44 - line 57; figures 1-10	5,6,8-12
A	EP 0 124 010 A (BAYER AG) 7 November 1984 see claims 1-6; figure 1	1,14
A	US 2 761 768 A (ALBERT D.) 4 September 1956 see the whole document	1,5,6,8,
e e		
	•	-

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Inte. .donal Application No PCT/EP 98/03037

Patent document cited in search repo	rt	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 1548277	Α	11-07-1979	NONE	
US 2518583	A	15-08-1950	NONE	
US 3268299	Α	23-08-1966	NONE	
EP 0124010	A	07-11-1984	DE 3315191 A BR 8401944 A CA 1211757 A JP 1744559 C JP 4032818 B JP 59205346 A	31-10-1984 04-12-1984 23-09-1986 25-03-1993 01-06-1992 20-11-1984
US 2761768	Α	04-09-1956	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inte. .donales Aktenzeichen PCT/EP 98/03037

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 B01J8/06 B01J19/24 B01J8/18 B01J19/18 B01J8/00 B01J8/22 B01J4/04 C07C209/36 C06B21/00 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 6 B01J C07C C06B Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehorende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Kategorie Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch Nr. X GB 1 548 277 A (ALLIED CHEMICAL 1,3,4,14 CORPORATION) 11. Juli 1979 siehe Seite 1, Zeile 33 - Seite 2, Zeile 5 siehe Seite 3, Zeile 22 - Zeile 48 siehe Seite 4, Zeile 49 - Zeile 63 siehe Seite 6, Zeile 17 - Zeile 21 5,6 US 2 518 583 A (WATSON C.C.) 1,2,14 15. August 1950 siehe Spalte 2, Zeile 53 - Spalte 3, Zeile siehe Spalte 4, Zeile 32 - Zeile 62 siehe Spalte 5, Zeile 16 - Zeile 46 siehe Spalte 6, Zeile 38 - Zeile 72 siehe Abbildungen 1,2 Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu Siehe Anhang Patentfamilie entnehmen Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "T" Spätere Veröffentlichung, die nach deminternationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der "A" Veröffentlichung, die den aligemeinen Stand der Technik definiert, Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Theorie angegeben ist Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erkann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soil oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie kann nicht als auf erlinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet ausgeführt) werden, wenn die Veröffentlichung miteiner oder mehreren anderen "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 22/10/1998 14. Oktober 1998 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.S. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Vlassis, M Fax: (+31-70) 340-3016